

論 文

UDC 622.341.1 : 669.094.1 : 669.12

高温加圧流動還元パイロットプラントの操業*

森中 功**・神谷 昂司**・櫻谷 和之**
北原 宣泰**・尾澤 正也**・田中 稔***

Operation of Pilot Plant for Fluidized Bed Reduction
at High Temperature and Pressure

Isao MORINAKA, Kōji KAMIYA, Kazuyuki SAKURAYA,
Nobuyasu KITAHARA, Masaya OZAWA, and Minoru TANAKA

Synopsis:

In order to develop a direct reduction process by fluidized bed, experimental operations of a pilot plant were carried out. The plant comprised multiple fluidized beds with both counter current and cross current contacting of ore and gas in a reactor of 25 cm inner diameter.

The results are summarized as follows.

1) Stable and sintering-free continuous operation at a maximum temperature of 900°C was carried out, using coarse particles of Hamersley iron ore (16-115 mesh) under pressure of 7 kg/cm²G; the product of a reduction of above 95% was obtained, the utilization of hydrogen gas was 17%, and productivity was 55 t/m²d.

2) The distribution of fractional reduction in a fluidized bed was surveyed by magnetic separation of samples obtained from the bed. Reduction rate of particles in the bed was obtained directly from the distribution curve. An operation analysis was made on this information of particle reduction.

3) Operations using a partition plate designed by the authors were successful and effective to increase reduction of products and productivity.

1. 緒 言

粉鉄鉱石をそのまま還元ガスによつて、700°C以上の温度で連続的に還元する高温流動還元法は、ペレットあるいは塊鉄石を還元するシャフト炉法とともに将来有望な直接還元法であると考えられているが、その実用化はシャフト炉法に比べて後れているのが現状である¹⁾²⁾。この理由は、シャフト炉法が高炉法と共通の技術的基盤を持つているのに対し、流動法は製鉄法としてまだ技術的に未解決の問題が残されているためである。これらの問題点を検討するために著者らは内径 25cm の高温加圧流動還元パイロットプラントを用いて、昭和 48 年から実験を行つてきた。このパイロットプラントの実験目標はシャフト炉の操業成績にほぼ近いものとして、製品還元率約 95%、ガス利用率約 30%、生産性約 50t/m²d 以上の達成と焼結トラブルのない安定操業とした。

著者らはこれらの実験目標を達成するための基礎技術

として、溢流管を用いる多段化法と分割板を用いる多室化法における装置構造と鉄石流れの安定化条件について³⁾、また、鉄石の流動化条件と制御方法について⁴⁾、すでに報告したが、本報告ではパイロットプラントの操業におけるガス利用率、製品還元率、生産性と操業条件との関係について検討し、また、連続流動層における鉄石粒子の還元率分布を求め、これに基づき操業の理論解析を行つた。

2. 実験方法

2.1 試料

実験に使用した鉄鉱石は Hamersley の焼結鉄用原料で、これをローラーミルで粉碎、整粒して得られた 16~115mesh の粒度範囲のものである。この試料の粒度分布と化学分析値を Table 1 に示す。前報⁴⁾で述べたようにこの微粉 (-115mesh) の少い粉鉄を用いて、流動化流速を大きくすることにより、層内における鉄石粒子

* 昭和 52 年 4 月本会講演大会にて発表 昭和 53 年 3 月 17 日受付 (Received Mar. 17, 1978)

** 金属材料技術研究所 (National Research Institute for Metals)

*** 金属材料技術研究所 工博 (National Research Institute for Metals, 2-3-12 Nakameguro Meguro-ku Tokyo 153)

Table 1. Particle size distribution and chemical composition (wt%) of Harmersley iron ore used for the pilot plant operation.

mesh	16~24	24~32	32~60	60~80	80~100	100~115	-115	T. Fe	FeO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	P	S
wt%	35.9	17.2	25.7	9.3	5.4	3.4	3.1	65.07	0.64	3.42	2.04	0.056	0.008

Mean diameter of particles, $\bar{d}_p=0.0387\text{cm}$

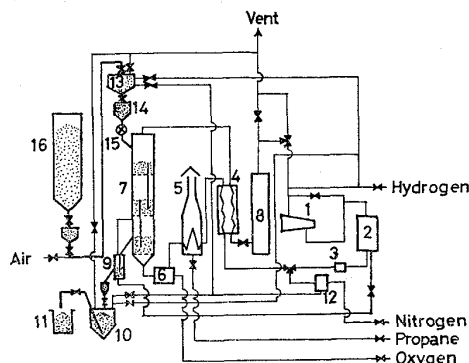
の運動は激しくなり、還元温度 900°C においても焼結トラブルは起こらなかった。

2.2 実験装置

このパイロットプラントは前述の目標を達成するために次のような特徴をもっている。

- 1) 還元速度を大にし、かつガス利用率を高めるため、最終段温度を約 900°C とした。
- 2) このような高温での還元鉱粒子の焼結トラブルを防止するため微粉 (-115mesh) の少い粉鉱を使用した。
- 3) 製品還元率とガス利用率の向上のため溢流管による多段化と分割板による多室化の併用を行った。
- 4) 加圧することにより層内において適正なガス流速を保ちながら大量のガスの循環を可能とした。
- 5) 水素の加熱方法としては、900°C までは LPG 燃焼により間接ガス加熱炉で行い、900°C 以上 1200°C までは少量の酸素吹き込みによる水素の部分燃焼で行った。

装置の概要を Fig. 1 に示す。粉碎、整粒された鉱石は貯鉱槽 16 よりホッパー 13, 14 を経て、ロータリーバルブ 15 により還元炉の上段に連続的に給鉱される。流動還元炉は上より R-1, R-2, R-3 の 3 段から成り、



- | | |
|-------------------------------|-------------------------|
| 1. Compressor | 10. Hopper |
| 2. Surge tank | 11. Product |
| 3. Flow meter | 12. Nitrogen gas holder |
| 4. Heat exchanger | 13. Hopper |
| 5. Heater | 14. Hopper |
| 6. Partial combustion furnace | 15. Feeder |
| 7. Reactor | 16. Ore bin |
| 8. Scrubber | Valve |
| 9. Cooler | Automatic stop valve |

Fig. 1. Schematic diagram of pilot plant.

その内径は 25cm でアルミナのキャストブル耐火物でライニングされ、R-2, R-3 の鉄皮は水冷ジャケットを備えている。各段にはサイクロンが内装されている。各段のガス分散板はノズル型で、圧損失が適正な範囲になるようにそれぞれの開孔比を定めた。溢流管下端部にはオリフィスを設け、各段の鉱石を連続かつ安定に流下させた。また、R-3 には著者らの考案した分割板³⁾を使用し、製品還元率の向上を図った。各段の流動下状態や鉱石滞留量を知るために流動層上部とガス分散板下部に測圧口を設け、差圧の値やその振幅を記録、監視した。試料採取装置は各槽に 1 個ずつ設けた。R-3 の還元鉱は一部水冷された溢流管を経て流動層冷却器⁹に流下する。冷却器は内径 10cm, 高さ 110cm のステンレス鋼製で水冷ジャケットを備えている。この冷却器に流下した高温の還元鉱はサージタンク 2 から分岐された常温水素によつて急冷され、溢流管を経て製品ホッパー 10 に貯えられ、一定量に達した後、系外に排出、秤量される。

還元ガスはコンプレッサー 1 によりサージタンクに送られ、一定圧力に保持された後、流量制御される。このガスは還元炉排ガスと熱交換して 200~300°C に予熱後、水素加熱炉 5 に入り 900°C まで加熱され、さらに部分燃焼炉 6 において酸素吹き込みにより 1200°C まで加熱され R-3 に供給される。高温水素は各段を上昇しながら鉱石を加熱、還元し R-1 から排出される。この排ガスはスクラバー 8 において生成水蒸気とダストを除去後、新たに補給された水素と混合し循環される。

2.3 実験方法

各段にそれぞれ所定量の鉱石を充てんした後、加圧-減圧法によつて系内の空気を窒素、水素の順で置換し、運転を開始した。実験はすべて炉内圧 7.0kg/cm²G で行った。運転の開始及び流速条件の設定については前報⁴⁾に述べた方法に従った。

還元鉱試料は各槽から一定時間ごとに採取し、再酸化法により還元率を測定した。低温還元試料は発火性であるため、還元温度 700°C 以下での試料は窒素中で秤量した。

還元ガス組成の制御は系内への水素、窒素の補給と循環ガスの一部の系外放出により行つた。一回の操業時間

は約 20~40h で、実験終了後は炉を解体して炉内の状況を観察した。

3. 実験結果と考察

3.1 ガス温度と吹込み酸素量及び各段温度との関係

このパイロットプラントでは鉱石の予熱を行っていないため、鉱石の加熱と反応熱の供給はすべて送入ガスの顕熱によつてまかなわなければならない。このため少量の酸素吹き込みによる送入水素の部分燃焼を行った。間接ガス加熱炉で 900°C まで加熱された還元ガスの温度は途中の配管部分での熱損失のため低下し、流動炉入口温度 T_{in} は 750~800°C となるが、部分燃焼炉への酸素吹き込み量 q_{O_2} の還元ガス流量 Q_P に対する比、 q_{O_2}/Q_P の増加に伴い直線的に増大し、 $q_{O_2}/Q_P=0.026$ で $T_{in}=1150^\circ\text{C}$ の高温が得られた。この場合、R-3 入口の還元ガス中の水蒸気モル分率は約 0.05 となるが、還元反応への影響を考慮してこの値をおよその上限とした。このパイロットプラントでは途中の配管及び各段炉壁の熱損失に相当する熱量を補い、R-3 温度を 850~900°C に保持するため酸素吹き込み量は q_{O_2}/Q_P の比で 0.026 程度必要であつたが、これらの熱損失を減少することができれば、より少量の酸素吹き込みによつて高い還元温度を得ることが可能と思われる。

各段の温度は流動炉入口ガス温度、流量、給鉱速度によつて定まる。給鉱速度 120kg/h の場合について、この関係を Fig. 2 に示す。各段の温度は流動炉入口ガス温度とともに高くなり、R-3 温度 850°C 以上を得るために、ガス流量 250~260Nm³/h では入口ガス温度 1200°C 以上が必要であるが 330~340Nm³/h では 1060°C

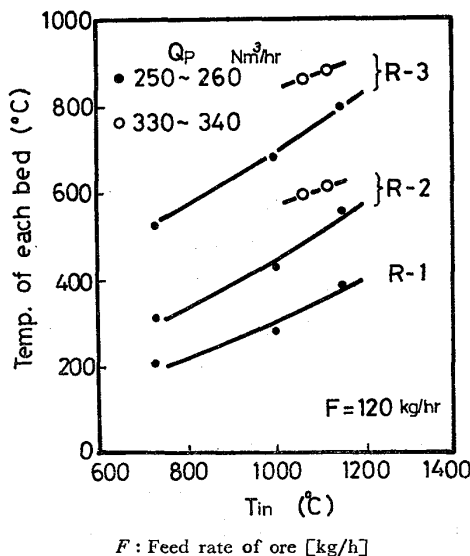


Fig. 2. Relation between temperature of each bed and temperature of gas entering.

と低くすることができた。また、R-1 温度は 400°C 以上は得られず、還元は R-1 でほとんど進行しなかつたので、主に R-2, R-3 の 2 段又は分割板で 2 室化した R-3 から成る還元槽 3 槽で実験を行った。

3.2 操業条件と結果

さきに掲げた操業目標に対して

1) 製品還元率の向上のためには、

- a) 層温度の適切な選定により還元反応速度を増大する。
- b) 多槽化により未反応粒子の製品への混合を減ずる
- c) (給鉱速度)/(水素流量) 比を低くとる。
- d) 層内滞留時間を増す。

などが考えられる。

2) ガス利用率の向上のためには、

- a) 水素による還元平衡の面で有利な高温にする。
- b) 多槽化による製品還元率の向上。
- c) 反応速度の増大。
- d) (給鉱速度)/(水素流量) 比を高くとる。

などが挙げられる。1) の c), d) を除いて、これらの条件は生産性の向上につながるものである。以上の各項を考慮して、前記目標の達成のため、

1) 焼結トラブルを避け、かつ、還元速度、平衡の面から有利な温度範囲として R-3 温度 850~900°C を選ぶ。

2) R-3 に分割板を用いて 2 室とし、鉱石流れを押し出し流れに近づけ、製品の平均還元率の向上を図る。という基本条件に、

3) 送入ガスに最大 15% までの窒素を混入し、水素流量の減少による層内への入熱の減少をこれで補つて反応温度を確保し、(給鉱速度)/(水素流量) 比の増大を図る。

という条件を加え、給鉱速度に応じて送入ガス流量、酸素吹き込み量を変化させて一連の実験を行い、その操業条件と結果を Table 2 に示す。

鉱石還元における水素ガス利用率 η_R 、部分燃焼による水素転換率 η_C 、及びこれらを合わせた全水素転換率 η は(1)式で与えられる。

$$\eta_R = \frac{1.4FR\bar{Y}}{Q_{H_2}}, \quad \eta_C = \frac{2q_{O_2}}{Q_{H_2}}, \quad \eta = \eta_R + \eta_C \quad \dots (1)$$

F/Q_{H_2} と η_R , η_C との関係を Fig. 3 に示す。実線は(1)式による F/Q_{H_2} と η_R との関係を R をパラメータとして示したもので、パイロットプラントで得られた結果は、R-3 温度 850°C 以上の場合とそれ以下の場合とに区別してプロットした。 F/Q_{H_2} が 0.5 までは製品還元率はほとんど変化せず、 F/Q_{H_2} の増加とともに η_R は

Table 2. Results obtained from the pilot plant.

No.		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10		
Feed rate		kg/h	56	112	93	153	209	113	124	124	155	122	
Press. of H ₂ in reactor		kg/cm ²	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	
Process gas	Flow rate	Nm ³ /h	330	280	331	341	333	275	264	261	294	250	
	H ₂	%	98.4	97.9	96.8	97.2	97.2	85.0	97.7	97.7	94.3	85.6	
Flow rate of O ₂		Nm ³ /h	4.5	6.5	6.5	9.5	10.2	6.0	3.8	6.4	8.0	6.8	
Temperature	R-1		—	—	—	—	—	—	285	390	—	—	
	R-2		750	580	580	565	540	610	430	565	590	610	
	R-3	No. 1	890	894	900	860	780	870	651	772	842	873	
		No. 2			940	893	836	925	726	843	859	889	
	Gas introduced		1 000	1 100	1 060	1 180	1 200	1 100	1 005	1 155	1 150	1 150	
Reduction	R-1		—	—	—	—	—	—	0	4.5	—	—	
	R-2		53.5	17.1	30.0	11.2	11.9	21.1	4.2	15.2	15.5	14.1	
	R-3	No. 1	97.7	95.9	95.3	91.9	69.2	90.7	44.5	71.3	84.8	82.5	
		No. 2			98.1	95.7	80.0	97.6	63.9	87.6	91.0	92.0	
	Total		—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	
Conversion	Utilization	R-1 & R-2		3.6	2.7	3.4	2.0	3.0	4.0	0.8	2.9	3.4	3.2
		R-3	No. 1	3.0	12.7	14.9	29.2	29.0	26.4	15.2	21.4	30.5	30.5
			No. 2			0.6	1.4	5.5	2.6	7.3	6.2	2.9	4.3
	Total		6.6	15.4	11.2	17.3	20.2	18.5	12.0	16.7	20.1	20.6	
	Combustion		2.6	4.7	4.2	5.7	6.3	5.1	2.9	5.0	5.8	6.4	
	Total		9.2	20.1	15.4	23.0	26.5	23.6	14.9	21.7	25.9	27.0	
Production		t/d	1.0	2.0	1.6	2.7	3.9	2.0	2.4	2.3	2.8	2.2	
Productivity		t/m ³ d	4.4	8.8	7.1	12.0	17.3	8.8	10.6	10.0	12.4	9.7	
		t/m ² d	20.4	40.8	32.7	55.1	79.6	40.8	49.0	45.8	57.0	44.8	

大きくなるが、 F/Q_{H_2} が 0.5 以上になると R-3 温度 850°C 以上を保持することができず、このため製品還元率が低下し、 η_R の増加も小となった。

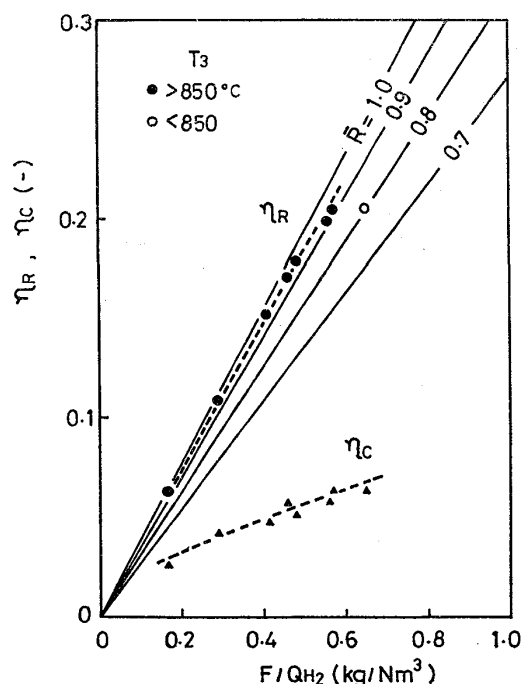
15% までの窒素の混入は R-3 温度の上昇に若干の寄与はあつたが、製品還元率向上への寄与は顕著でなかつた。

しかし、酸素吹き込みによる水素の転換率を Fig. 3 に示した値に保ち、製品還元率 0.95 を得ることができれば、 $F/Q_{H_2}=0.6$ で η は 0.3 に達する。このためには炉壁の断熱性を改善し熱損失の減少を図り各段の還元温度を高める必要がある。R-3 温度を 850°C 以上に保

持した場合の R-3 第 1 室でのガス利用率は Table 2 に示したように高い値を示し酸素吹き込みによる水素転換率と合わせれば、層出口の水蒸気モル分率は平衡値にかなり近い値となつているため、全体のガス利用率を向上するためには R-2 温度を上昇しこの段でのガス利用率を高くすることが必要である。このパイロットプラントでは炉壁の熱損失を十分に減少できず、また鉱石の予熱を行わなかつたが、これらの対策を行うことにより、給鉱量を増大しても少量の酸素吹き込み量で各段の還元温度を保持し、ガス利用率を目標の 0.3 に近づけることができるであろう。

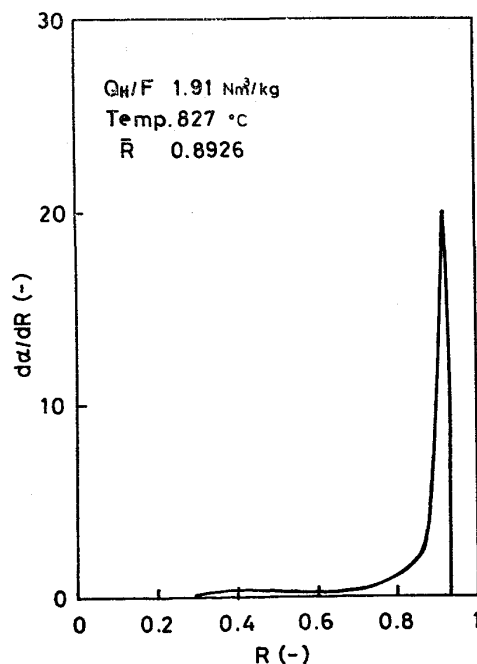
Table 3. Comparison of operation results of NRIM Proces and others.

		NRIM Process	Nu-IRON Process	Yawata Token Process
Feed rate	kg/h	153	113	30~60
Flow rate of process gas	Nm ³ /h	341	177	150~250
Concentration of H ₂	%	97.1	85.0	80~97.5
Temp. of entering gas	°C	1 180	870	600~650
Pressure in reactor	kg/cm ² G	7.0	0.1~0.2	2~3
Temp. of reduction	°C	890	704	550
No. of stage for reduction	—	3	2	3
Degree of reduction	%	95.7	90.0	90.0~95.0
Utilization of H ₂	%	17	30	11~12
Total mean residence time	h	0.52	17	3.2~4.5
Production	t/d	2.7	2.0	1.1~1.4
Productivity	t/m ² d	55.1	14.5	15.6~19.8



η_R : Utilization of hydrogen gas by reduction [-]
 η_C : Conversion of hydrogen gas by partial combustion [-]
 T_3 : Temperature of R-3 bed
 Fig. 3. Relation between utilization of hydrogen gas and F/Q_{H_2} .

Table 2 の実験 No. 4 で得られた結果はガス利用率を除き、パイロットプラントにおける操業目標をだいたい満足するものであり、この結果をこのパイロットプラントと同程度の規模の他のプロセスと比較したものを Table 3 に示す⁵⁾⁶⁾。著者らの方法の特徴は圧力、還元温度、生



α : Weight fraction of iron ore particles in bed [-]
 Fig. 4. Distribution of fractional reduction of iron ore particles in bed of R-3.

産性の高いこと、さらに鉱石の平均滞留時間の短いことである。ガス利用率は 17.3% ではあるが、部分燃焼による転換率を考慮すると全転換率 23% となつた。

3.3 連続流動層における炉内鉱石層の還元率分布と還元速度

連続流動層においては粒子は完全混合と考えられ、滞

留時間に分布があるため炉内鉱石層中に還元率分布を生ずる。従来はこのような還元率分布を知る方法はなく、層内における鉱石粒子の還元速度は実験により得られた平均還元率から推定するほかなかつた。著者らは特殊な磁選機 (三菱重工製)⁷⁾ を用いて還元鉱中の粒子を還元率の大小によつて分離し還元鉱の還元率分布を調べ、これより層内における鉱石粒子の還元速度を求め、それに基づき操業の解析を行つた。

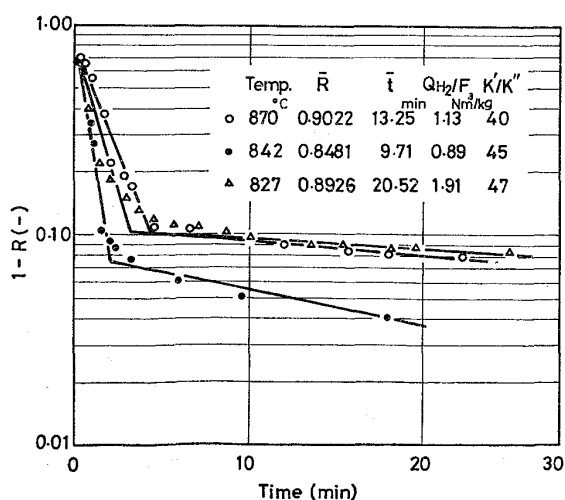
R-2, R-3 の 2 段で還元を行つた場合の R-3 の層内の還元率分布の例を Fig. 4 に示す。この場合の R-2 の還元率は 0.17 であるが、R-3 の層内には還元率 0.3 以下の粒子はほとんどなく、還元率 0.3 まではきわめて短時間に還元が行われ、R-2 での還元は R-3 内での還元率分布に影響しないものと考えられる。したがつてこのような場合の R-3 の還元率分布は 1 槽還元の場合と同様に取扱うことができる。

流動層内での粒子の混合は一般に完全混合に近いとされており、この場合の単段流動層における粒子の滞留時間分布関数、 $E(t)$ は (2) 式で示される。

$$E(t) = \frac{1}{t} e^{-t/\bar{t}} \dots \dots \dots (2)$$

前述のような還元率分布を積分し、(2) 式の積分値と対応させることにより鉱石粒子の還元曲線を求めることができる。これにより求めた還元曲線の例を Fig. 5 に示す。この図より R-3 のような高温流動還元における Hamersley 鉱石粒子の還元について次のことが明らかになった。

1) 還元率約 0.3 まではきわめて短時間で還元され



\bar{R} : Mean fractional reduction [-]
 \bar{t} : Mean residence time of ore [-]
 Q_{H_2}/F : Feeding ratio of gas to ore [Nm³/kg]
 K'/K'' : Ratio of apparent rate constant of two regions

Fig. 5. Relation between residence time and fractional reduction.

る。

2) 還元率約 0.3 から約 0.9 までは還元の進行が速く、鉱石の還元率に対して 1 次反応として取扱うことができる。

3) 還元率約 0.9 以上の段階では還元の進行が前記 2) の場合に比べてかなり遅い。

したがつて上記 2), 3) の各還元段階のいずれも鉱石の還元率に対し 1 次反応として取扱うとすれば (3) 式のように表すことができる。

$$\left. \begin{aligned} R &= R_0 \sim R_a; & 1-R &= (1-R_0)e^{-K't} \\ R &= R_a \sim 1; & 1-R &= (1-R_a)e^{-K''(t-t_a)} \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (3)$$

ここで

$$K' = k'(y_e - \bar{y}), \quad K'' = k''(y_e - \bar{y}) \dots \dots \dots (4)$$

と仮定する。

単段連続流動層からの製品の平均還元率、 \bar{R} について

$$1 - \bar{R} = \int_0^\infty (1-R)E(t)dt \dots \dots \dots (5)$$

$R_0 \sim R_a$ 間の鉱石粒子の平均還元率を \bar{R}' ,

R_a 以上の鉱石粒子の平均還元率を \bar{R}'' , その全鉱石粒子に対する割合を χ とすれば、 χ は (6) 式で示される。

$$\chi = e^{-t_a/\bar{t}} = \left(\frac{1-R_a}{1-R_0} \right)^{1/K''\bar{t}} \dots \dots \dots (6)$$

また \bar{R} は (7) 式で示される。

$$1 - \bar{R} = (1 - \bar{R}') (1 - \chi) + (1 - \bar{R}'') \chi \dots \dots \dots (7)$$

したがつて (2), (3) 式より

$$\begin{aligned} (1 - \bar{R}') (1 - \chi) &= \int_0^{t_a} (1-R_0)e^{-K't} \frac{1}{t} e^{-t/\bar{t}} dt \\ &= \frac{1-R_0}{1+K'\bar{t}} - \frac{1-R_a}{1+K'\bar{t}} \chi \dots \dots \dots (8) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} (1 - \bar{R}'') \chi &= \int_{t_a}^\infty (1-R_a)e^{-K''(t-t_a)} \frac{1}{t} e^{-t/\bar{t}} dt \\ &= \frac{1-R_a}{1+K''\bar{t}} \chi \dots \dots \dots (9) \end{aligned}$$

以上により単段連続流動炉における製品に関する平均還元率は (10) 式のように表される。

$$1 - \bar{R} = \frac{1-R_0}{1+K'\bar{t}} - \frac{1-R_a}{1+K'\bar{t}} \chi + \frac{1-R_a}{1+K''\bar{t}} \chi \dots \dots (10)$$

本実験においては R_0 は約 0.3, R_a は約 0.9 で実験条件によりほとんど変化しなかつたので、 $R_0=0.3$, $R_a=0.9$ 一定として取扱つた。 χ は (6) 式より $K'\bar{t}$ の関数であるので (10) 式において $K'\bar{t}$ をパラメーターとして \bar{R} と K'/K'' の関係を求め、Fig. 6 に示した。この図から K'/K'' が大となるほど \bar{R} は低くなるが、その低下の度合いも小となることがわかる。本実験においては K'/K'' は Fig. 6 に示したように 40~50 であり、この範囲の \bar{R} の変動幅は約 0.01 程度にしか過ぎないので K'/K'' は 50 一定として以後の検討を行つた。

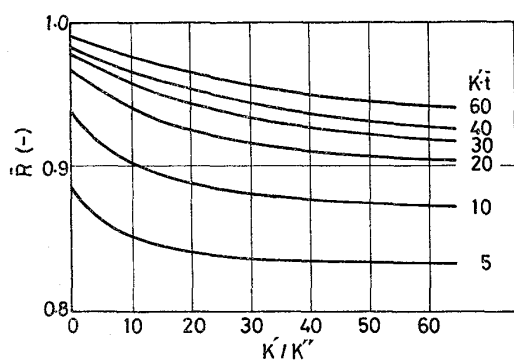


Fig. 6. Effect of K'/K'' on mean fractional reduction in various $K' \cdot \bar{t}$.

以上により、ある操作条件が与えられたときの \bar{R} を予測するためには K' を求める必要がある。しかしそのためには k', k'' を求める必要があり、還元ガス及び鉱石粒子の挙動について次の仮定に基づく検討を行った。

- 1) 鉱石粒子は層内では完全混合の状態にある。
- 2) 還元ガスの流れは押し出し流れとする。

流動層の高さ方向の微小部分についてガス側の物質収支より (11) 式を得る。

$$\frac{dy}{dz} = \frac{1.5F^*(R_0 - R_T)}{Q^*} + \frac{1.5M^*}{Q^*} \times \{k'(1 - \bar{R}')(1 - \chi) + k''(1 - \bar{R}'')\chi\} \times (y_e - y) \dots (11)$$

ここで

$$\frac{1.5F^*(R_0 - R_T)}{Q^*} = \lambda, \quad \frac{1.5M^*k'(1 - \bar{R}')}{Q^*} = \beta',$$

$$\frac{1.5M^*k''(1 - \bar{R}'')}{Q^*} = \beta'' \dots (12)$$

とおくと (11) 式は

$$\frac{dy}{dz} = \lambda + \{\beta'(1 - \chi) + \beta''\chi\} (y_e - y) \dots (13)$$

入口及び出口の水蒸気モル分率をそれぞれ y_{in}, y_{out} とすれば $z=0$ で $y=y_{in}$, $z=1$ で $y=y_{out}$ となり、(13) 式より

$$\frac{\lambda + \{\beta'(1 - \chi) + \beta''\chi\} (y_e - y_{out})}{\lambda + \{\beta'(1 - \chi) + \beta''\chi\} (y_e - y_{in})} = e^{-\{\beta'(1 - \chi) + \beta''\chi\}} \dots (14)$$

また層全体の物質収支より、

$$y_{out} - y_{in} = \frac{1.5F^*(\bar{R} - R_T)}{Q^*} \dots (15)$$

これらの式に操作条件と実験により求めた K', K'' を代入すれば、 k', k'' が求められる。また逆に k', k'', R_0, R_a が既知であれば与えられた操業条件での K', K'' も同様にして求められ、その値を上記のそれぞれの式に代入することにより \bar{R}, y_{out} を算出することができる。

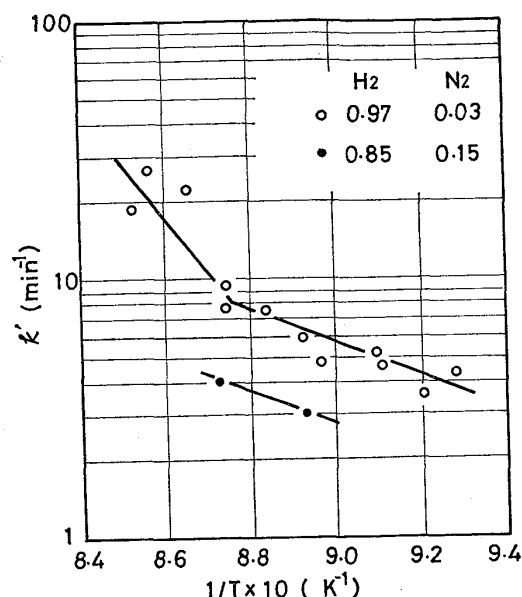


Fig. 7. Arrhenius-type plots for Hamersley ore in fluidized bed reduction with H_2-N_2 .

このパイロットプラントにおける実験結果より求めた k' の温度依存性を Fig. 7 に示す。還元ガス中の窒素濃度が低い場合、 k' は $870^\circ C$ 以上で温度依存性が大きな傾向が認められたが、その原因についてはさらに詳細な実験及び検討を加える必要がある。また還元ガス中の窒素の増加により還元速度の低下が認められた。

3.4 最下段第2室の平均還元率

給鉱に還元率分布がない場合の連続流動層の平均還元率は前述のように求められる。しかし R-3 第2室においては還元率分布のある還元鉱が第1室から供給されるので、次のような取扱いが必要となる。すなわち、第1室の還元鉱を還元率の微小変化ごとに区分し、その区分された粒子群においては均一還元率として取扱い、この粒子群が第2室において流動還元されて生ずる還元率分布については前節と同様にして計算し、第2室全体の平均還元率を求めなければならない。

第1室の、区分された粒子群ごとの還元率を $R_{1,1}, R_{1,2}, \dots, R_{1,i}, \dots$, それぞれの存在割合を $\alpha_1, \alpha_2, \dots, \alpha_i, \dots$, とし、 $(R_{1,1}, \alpha_1), (R_{1,2}, \alpha_2), \dots, (R_{1,i}, \alpha_i), \dots$, の還元鉱粒子群が R-3 第2室に供給されて還元反応が行われ、これより排出されるとき、このおのおのの粒子群ごとの第2室における平均還元率を $\bar{R}_{2,1}, \bar{R}_{2,2}, \dots, \bar{R}_{2,i}, \dots$, とすると次の関係式が得られる。

$$R_{1,i} < R_a:$$

$$1 - \bar{R}_{2,i} = \frac{1 - R_{1,i}}{1 + K_2' \bar{t}} - \frac{1 - R_a}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \chi_{a,i} + \frac{1 - R_a}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \chi_{a,i} \dots (16)$$

$$R_{1,i} \geq R_a :$$

$$1 - \bar{R}_{2,i} = \frac{1 - R_{1,i}}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \dots \dots \dots (17)$$

ここで $\chi_{a,i}$ は還元鉱粒子群ごとの R_a 以上の存在割合。したがって第 2 室に関し、 R_a 以下のものの平均還元率を \bar{R}_2' 、 R_a 以上のものの平均還元率を \bar{R}_2'' 、 R_a 以上の存在割合を χ_2 とすると第 2 室の平均還元率 \bar{R}_2 は (18) 式で示される。

$$\left. \begin{aligned} 1 - \bar{R}_2 &= (1 - \bar{R}_2') (1 - \chi_2) + (1 - \bar{R}_2'') \chi_2 \\ &= \sum_{i=1}^{m-1} \alpha_i \left(\frac{1 - R_{1,i}}{1 + K_2'' \bar{t}_2} - \frac{1 - R_a}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \chi_{a,i} \right) \\ &\quad + \sum_{i=1}^{m-1} \alpha_i \frac{1 - R_a}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \chi_{a,i} + \sum_{i=m}^n \alpha_i \frac{1 - R_{1,i}}{1 + K_2'' \bar{t}_2} \\ \chi_2 &= \sum_{i=1}^{m-1} \alpha_i \chi_{a,i} + \sum_{i=m}^n \alpha_i \end{aligned} \right\} \dots (18)$$

$$i=m \text{ で } R_{1,m} = R_a$$

$$i=n \text{ で } \sum_{i=1}^n \alpha_i = 1$$

第 2 室の y_{out} は操業条件及び \bar{R}_2 より求められる。また y_{out} と K' 、 K'' との関係は (14) 式と同様に求められるが、供給される還元鉱の還元率は R_0 より高いので $\lambda=0$ となるため、この関係は (19) 式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} \frac{y_e - y_{out}}{y_e - y_{in}} &= e - (\beta_2' (1 + \chi_2) + \beta_2'' \chi_2) \\ \beta_2' &= \frac{1.5M * k' (1 - \bar{R}_2')}{Q * } \\ \beta_2'' &= \frac{1.5M * k'' (1 - \bar{R}_2'')}{Q * } \end{aligned} \right\} \dots (19)$$

これらの関係から、操業条件が与えられれば第 2 室の製品平均還元率は計算によつて求められる。このようにして求めたパイロットプラントの操業条件からの R-3 第 2 室の成品平均還元率の計算値を実験値とともに Table 4 に示す。両者の値は比較的良好一致しており、したがって以上の解析方法を用いれば、ある操業条件における製品の還元率をかなりの精度で推定することが可能である。

3.5 操業に及ぼす分割板の影響

このパイロットプラントの操業条件から R-3 第 1 室、第 2 室の平均還元率の推算方法について述べたが、ここではこの解析法に基づき、操業に及ぼす分割板の影響について検討した。

分割板により 2 分割された R-3 の第 1 室に R-2 で予備還元された鉱石が供給された場合の Q_{H_2}/F と平均滞留時間、 \bar{t}_1 との関係は R-2 での鉱石の還元率、 R_T と R-3 第 1 室で得られる平均還元率、 \bar{R}_1 をパラメータとして還元温度 850°C の場合を Fig. 8 に示した。 Q_{H_2}/F が小になると \bar{t}_1 を大きくとる必要があり、 $\bar{R}_1 = 0.90$ を得る場合に必要な \bar{t}_1 は $Q_{H_2}/F = 1.5 \text{ Nm}^3/\text{kg}$ 以下で急に増大する。これは層内の水蒸気の濃度の上昇により還元速度が低下するためである。これに対し、上段の還元率、 R_T が高い程、 \bar{t}_1 を小にできるがこの傾向は Q_{H_2}/F が小になるほど著しい。 $\bar{R}_1 = 0.95$ を得るためには $\bar{R}_1 = 0.90$ を得る場合の \bar{t}_1 の 4~5 倍が必要である。

R-3 第 1 室より第 2 室に供給された鉱石を平均還元率、 $\bar{R}_2 = 0.95$ まで還元するのに要する第 2 室での滞留

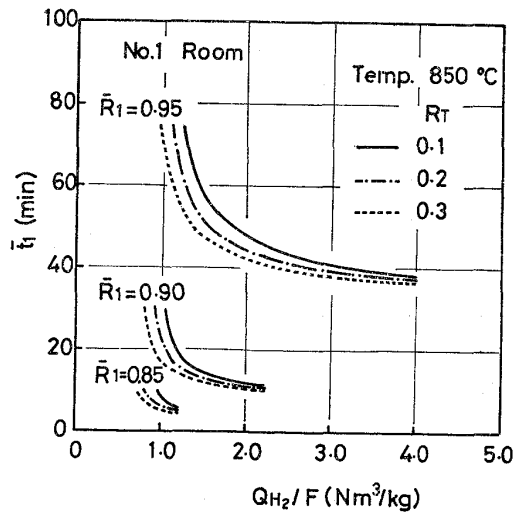


Fig. 8. Relation between \bar{t}_1 and Q_{H_2}/F in case of obtaining products ($\bar{R} = 0.85 \sim 0.95$) when reduced ores ($R_T = 0.1 \sim 0.3$) are continuously fed.

Table 4. Comparison of the experimental results with the calculated values.

Temp. (°C)	k' (min ⁻¹)	Feed rate (kg/h)	Flow rate (m ³ /h)	\bar{R}_2	
				calc.	exp.
859	7.5	155	139	0.933	0.910
876	11.0	121	162	0.958	0.955
880	12.5	113	136	0.955	0.954
890	17.5	113	126	0.964	0.951

Table 5. Effect of partition plate used in pilot plant on reduction.

Example No.	I		II		III	
	1	2	1	2	1	2
Number of rooms in R-3						
Temp. of R-3 °C	813	870*	847	850*	894	877*
(Temp. of No. 1 room °C)		(772)		(842)		(860)
(Temp. of No. 2 room °C)		(843)		(859)		(893)
Flow rate of hydrogen gas : Q_{H_2} Nm ³ /h	276	255	209	277	280	331
Feed rate of ore : F kg/h	112	124	112	155	112	153
Q_{H_2}/F Nm ³ /kg	2.46	2.06	1.87	1.79	2.45	2.16
Conversion of gas (H ₂)	0.184	0.217	0.255	0.258	0.201	0.230
Fractional reduction of product	0.877	0.876	0.863	0.910	0.959	0.957
Productivity t/m ² d	41.3	45.8	41.4	56.3	40.8	55.1

* Average of temperature of No. 1 room and No. 2 room.

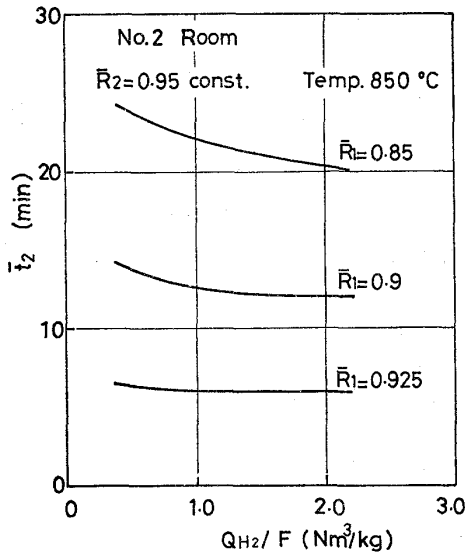


Fig. 9. Relation between t_2 and Q_{H_2}/F in case of obtaining products ($\bar{R}_2=0.95$) when reduced ores ($\bar{R}_1=0.85\sim 0.925$) are continuously fed.

時間 t_2 と Q_{H_2}/F との関係を \bar{R}_1 をパラメーターとして Fig. 9 に示したが、第 2 室においては t_2 に及ぼす Q_{H_2}/F の影響は第 1 室に比べて小さい。

R-3 を分割板を用いて分割した場合と、分割板を用いない場合について、同一製品還元率を得るのに必要なそれぞれの滞留時間を次の操業条件を例として検討した。還元温度は Fig. 8, 9 と同様に 850°C とし、 $Q_{H_2}/F=2.2\text{Nm}^3/\text{kg}$ 、 $R_T=0.2$ とすれば、製品還元率 0.95 を得るためには、分割板のない場合の R-3 での滞留時間は Fig. 8 より約 43min となる。これに対し、分割板を用いて R-3 の層断面積を等分割した場合は両室間の層高差は前報³⁾で報告したようにほとんどなく、第 1 室、第 2 室のそれぞれについて $Q_{H_2}/F=1.1\text{Nm}^3/\text{kg}$ となり、 $t_1=t_2$ となる。上段より $R_T=0.2$ の鉱石が供給される

と第 1 室で $t_1=14\text{min}$ で $\bar{R}_1=0.89$ に達し、さらにこの還元鉱は第 2 室でも同一の時間、滞留し ($t_2=14\text{min}$)、 $\bar{R}_2=0.95$ に達する。したがって R-3 での滞留時間の合計は約 28min となり、分割板のない場合の約 2/3 に短縮できる。

類似の温度条件における分割板を用いた場合と用いない場合の操業結果の比較を Table 5 に示す。I では製品還元率はほぼ等しいが、分割板を用いた場合にガス転換率と生産性が向上している。II はガス転換率がほぼ等しく、製品還元率が約 0.05 上昇し、生産性は約 15t/m²d 増大している。III ではいずれも製品還元率は目標値の 0.95 を越え、ほぼ等しい還元率となつているが、分割板を用いた場合のガス転換率は約 0.03、生産性は約 14t/m²d の増大を示し、Table 5 に示した例では最もよい操業成績を得た。

以上のように分割板を用いて R-3 を 2 室に分割することは、製品還元率、ガス利用率、生産性の向上に有効であつた。

4. 結 言

内径 25cm の高温加圧流動還元パイロットプラントの水素による実験を行い、次の結果を得た。

(1) 16~115mesh の粒度範囲の Hamersley 鉱石を用い、向流・十字流併用の流動炉により、安定な連続実験を行い、製品平均還元率約 95%、ガス利用率約 17%、生産性約 55t/m²d を得た。

(2) LPG 燃焼による間接加熱と送入水素への酸素吹き込みによる部分燃焼の併用法は加圧送入ガスの約 1200°C までの昇温に有効であつた。

(3) 流動層からの還元鉱を磁選機によつて還元率ごとに分離し、得られた還元率分布から層内の鉱石粒子の還元速度を直接求めることができた。これに基づき連続

流動還元炉の操業解析を行つた結果、操業条件から製品平均還元率を計算によつて求めることができ、計算値と実験値は比較的良好一致を示した。

(4) 著者らが開発した分割板は製品の平均還元率や生産性の向上に有効であつた。

本研究を遂行するにあたり終始実験に協力していただいた当研究所の大場章鉄製錬第1研究室長、郡司好喜鉄製錬第3研究室長、武内丈児、有富敬芳、各主任研究官、檀武弘、中村博昭、清水治郎、各研究員、工業化研究部の三井達郎主任研究官、高橋順次、岩井良衛、佐久間信夫、上平一茂、小黒信高、各研究員に深甚なる謝意を表します。

記 号

$E(t)$: 鉱石粒子の滞留時間分布関数	
F : 給鉄速度	(kg/h)
F^* : Fe モル数に換算した給鉄速度	(Fe-mol/h)
K' : $R_0 \sim R_a$ 間の見かけの還元速度定数	(min^{-1})
K'' : $R_a \sim 1$ 間の見かけの還元速度定数	(min^{-1})
k' : ガス濃度を考慮した $R_0 \sim R_a$ 間の還元速度定数	(min^{-1})
k'' : ガス濃度を考慮した $R_a \sim 1$ 間の還元速度定数	(min^{-1})
M^* : Fe モル数に換算した層内鉄量	(Fe-mol)
Q^* , Q_{H_2} : 水素流量	(mol/h), (Nm^3/h)
Q_P : 還元ガス流量	(Nm^3/h)
q_{O_2} : 酸素流量	(Nm^3/h)
R , \bar{R} : 還元率, 平均還元率	(-)
R_0 : 高温できわめて短時間に到達する還元率	(-)
R_a : 還元速度が急速に低下するところの還元率	(-)
R_T : 給鉄の還元率	(-)

\bar{R}' : $R_0 \sim R_a$ 間の鉄石粒子の平均還元率	(-)
\bar{R}'' : $R_a \sim 1$ 間の鉄石粒子の平均還元率	(-)
\bar{R}_1 : 第1室の平均還元率	(-)
\bar{R}_2 : 第2室の平均還元率	(-)
$\bar{R}_{1,i}$: 第1室 i 区分の平均還元率	(-)
$\bar{R}_{2,i}$: 第1室 i 区分の第2室における平均還元率	(-)
t , \bar{t} : 鉄石粒子の層内滞留時間, 同平均値	(min)
t_a : R_a までの到達所要時間	(min)
y : 水蒸気モル分率	(-)
y_e : $\text{FeO} + \text{H}_2 = \text{Fe} + \text{H}_2\text{O}$ の平衡水蒸気モル分率	(-)
y_{in} , y_{out} , \bar{y} : 層入口, 出口, 平均水蒸気モル分率	(-)
z : 層高に対する無次元高さ	(-)
α_i : $R_{1,i}$ の還元鉄粒子の存在割合	(-)
β' , β'' , λ : (12)式で定義された項	(-)
γ : 鉄石単位重量中の被還元酸素量	(-)
η , η_C : 全水素変換率, 部分燃焼による水素変換率	(-)
η_R : 還元による水素ガス利用率	(-)
λ : R_a 以上の鉄石粒子の存在割合	(-)

文 献

- 1) 西田信直: 鉄と鋼, 62 (1976), p. 705
- 2) 近藤真一: 鉄と鋼, 60 (1974), p. 1542
- 3) 神谷昂司, 櫻谷和之, 森中 功, 北原宣泰, 尾澤正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 169
- 4) 櫻谷和之, 北原宣泰, 森中 功, 神谷昂司, 尾澤正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979)p. 176
- 5) T. F. REED and J. C. AGARWAL: Iron Ore Reduction (1962), p. 174 [Pergamon Press]
- 6) 市嶋 勲, 近藤真一, 松本龍太郎, 須賀田正泰, 石川英毅, 中沢孝夫: 鉄と鋼, 51 (1965), p. 649
- 7) 日本特許, 特開, 昭 51-39456